

Linear and non-linear spectroscopy of semiconductors using synchrotron infrared

Doctoral Thesis**Author(s):**

Friedli, Peter

Publication date:

2013

Permanent link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-009904545>

Rights / license:

In Copyright - Non-Commercial Use Permitted

DISS. ETH NO. 21090

Linear and Non-Linear Spectroscopy of Semiconductors using Synchrotron Infrared

A dissertation submitted to
ETH Zürich

for the degree of
Doctor of Sciences

presented by
PETER FRIEDLI
Dipl. El.-Ing. ETH

born on February 3, 1982
citizen of Lützelflüh BE, Switzerland

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. Jérôme Faist
Prof. Dr. Gottfried Strasser
Dr. Hans Sigg

2013

Abstract

This thesis deals with linear and non-linear optical gain of quantum cascade lasers (QCLs) and the development of unique spectroscopic tools at the infrared (IR) beamline X01DC of the Swiss Light Source (SLS) synchrotron. These tools consist of (i) an ultra-broadband pump-probe system, and (ii) a diffraction-limited micro-spectroscopy transmission setup. These tools enable the investigation of the IR response of condensed matter systems and devices under conditions of strong electrical and/or optical excitation. It is shown that infrared synchrotron sources complement conventional infrared sources by offering a high-brilliance, broadband infrared spectrum and pulsed time-structure.

The first part of this thesis focusses on all-optical pump-probe experiments. A pulse of synchrotron infrared with a length of 100ps overlaps on the samples with a broadly tuneable pump pulse generated by non-linear generation from an Nd:YAG laser. This setup enables the investigation of dynamic processes down to the 100 ps limit. As a showcase, the optical gain and losses in Germanium-on-Silicon layers are investigated. A discussion is given on the possibility to realise a laser on Si using strained and doped Ge layers. Also, a brief introduction is given on the time-resolved investigation of photocatalytic processes using the here introduced pump-probe tool.

The second part of the thesis deals with the characterisation of QCLs both in the linear and the non-linear regime. QCLs are based on quantum wells and emit light in the mid- and far-Infrared. Their structure allows to design the spectral properties of the emission with a high degree of flexibility and tuneability. Light generation results from optical intersubband transitions between electron states in the conduction band of the semiconductor heterostructure. Because such laser devices contain single-mode waveguides (typically

smaller than $10 \times 3 \mu\text{m}$ in cross-section), the brilliance advantage of a synchrotron source enables new or more sophisticated measurements than those using alternative broadband sources, such as a Globar. Here, the transmission measurement directly resolves gain and losses in the broadband region of 0.1 - 0.7 eV. The spectrally resolved features are used to benchmark the accuracy of the performance prediction of two established modelling techniques against experimental data obtained from a high-performance QCL. For the first time, it is quantifiably shown that the non-equilibrium Green's function theory outperforms density-matrix calculations in the high-energy tail of the gain because of the inclusion of the carrier momentum distribution in k-space. The thus improved description of the total intersubband gain and absorption over a broad energy range promotes the development of broadband devices. Moreover, the setup is used for experimental investigations of advanced QCL structures that operate under pulsed and cryogenic conditions, such as quantum cascade structures based on quantum dashes and heterogenous quantum well stacks designed for ultra broadband emission.

Furthermore, non-linearities in quantum cascade lasers were investigated. The large optical matrix elements between the electron quantum states gives rise to strong third-order optical non-linearities. As a direct consequence, phase-locking of longitudinal modes by four-wave mixing is obtained which may eventually build the base for a frequency comb. Here, four-wave mixing over more than 3 THz in the mid-IR is shown by simultaneously injecting two lasers running at 67 and 70 THz, respectively, in an anti-reflection coated quantum cascade laser. In non-coated devices, spatial hole burning, which is due to the intrinsic fast gain in QCLs, is found to enhance this coupling even further.

Zusammenfassung

Die vorliegende Dissertation befasst sich mit linearem und nichtlinearem optischen Gewinn in Quantenkaskadenlasern (QCLs) und der Entwicklung von einzigartigen spektroskopischen Messaufbauten an der Infrarot (IR) Strahlenlinie X01DC der Synchrotron-Lichtquelle Swiss Light Source (SLS). Diese Instrumente umfassen (i) ein ultra-breitbandiges Pump-Probe Messsystem und (ii) einen diffraktionslimitierten Mikro-Spektroskopie Transmissions-Messaufbau. Dies ermöglicht die Untersuchung des optischen Verhaltens bei Infrarot Wellenlängen von Systemen und Bauteilen aus kondensierter Materie unter starker elektrischer und/oder optischer Anregung. Hier wird gezeigt, dass IR Synchrotronquellen konventionelle IR Quellen durch ihre hohe Brillanz, ihr breitbandiges Spektrum, und ihre gepulste Zeitstruktur ergänzen und damit neue Anwendungsbereiche möglich machen.

Der erste Teil der Dissertation konzentriert sich auf optische Pump-Probe-Experimente. Dazu wird mittels eines Synchrotron Lichtpulses von 100 ps Pulslänge die Charakteristik einer Probe untersucht, die gleichzeitig mit einem breit durchstimbaren, mittels nicht-linearen Prozessen aus einer Nd:YAG Laserquelle generierten, Pump-Pulses angeregt wird. Dieser Aufbau erlaubt es, dynamische Prozesse mit einer Zeitauflösung von besser als 100 ps zu untersuchen. Zur Demonstration werden die optischen Gewinne und Verluste in Germanium Schichten untersucht. Die Möglichkeit, mittels verspanntem und dotiertem Germanium eine Laserquelle in Silizium zu realisieren, wird diskutiert. Zusätzlich wird eine Einführung zu den zeitaufgelösten Untersuchungen von photokatalytischen Prozessen gegeben.

Der zweite Teil der Dissertation befasst sich mit der Charakterisierung von QCLs, sowohl in ihrem linearen als auch nicht-linearen Regime. QCLs basieren auf Quanten-Töpfen und

emittieren Licht im Mittel- und Fern-Infrarot. Ihr Schichtaufbau erlaubt es, die spektralen Eigenschaften der Emission direkt zu gestalten. Die Lichtgeneration erfolgt über optische Intersubband-Übergänge zwischen den Elektronenzuständen im Leitungsband. Da solche Bauteile Wellenleiter mit sehr kleinen Dimensionen (Querschnitt $< 3 \times 10 \mu\text{m}$) aufweisen, werden durch die hohe Brillanz des Synchrotron-Infrarotes neue oder fortgeschrittene Messtechniken ermöglicht, verglichen zu anderen breitbandigen Quellen, wie eines Globar. So können mittels Transmissionsmessungen die optischen Verluste und Gewinne in einem breitbandigen Bereich zwischen 0.1 - 0.7 eV direkt bestimmt werden. Die spektral aufgelösten Messdaten werden verwendet, um die Ergebnisse zweier etablierter Modellierungstechniken zu vergleichen. Es wird gezeigt, dass die *Non-Equilibrium Green's Function* Theorie sogenannte *Density Matrix* Modelle bei der Beschreibung der optischen Charakteristiken im höher energetischen Bereich übertrifft. So wird die Beschreibung der Absorption bei höheren Energien zwischen angeregten Zuständen nahe bei den aktiven Quantentöpfen durch die Einbeziehung der Ladungsträger-Verteilung im Impulsraum optimiert. Als Resultat ergibt sich eine verbesserte Beschreibung der optischen Gewinne, förderlich für die Entwicklung von sehr breitbandigen Bauteilen. Ausserdem wurde der Messaufbau erweitert, um neuartige QCL Strukturen, die unter gepulster Anregung und/oder bei sehr tiefen Temperaturen betrieben werden müssen, charakterisieren zu können. So konnten qualitative Rückmeldungen über den spektralen Gewinn in Kaskadenstrukturen gegeben werden, die aus Quanten-Punkten anstelle von -Töpfen bestehen, oder eine heterogene Quanten-Topf Struktur aufweisen.

Darüber hinaus wurden nichtlineare Effekte in QCLs untersucht. Das grosse optische Übergangselement zwischen den Elektronenzuständen führt zu einer starken Nicht-Linearität dritter Ordnung. Als eine direkte Konsequenz werden durch sogenanntes Vier-Wellen-Mischen gleichmässig im Frequenzraum verteilte optische Moden angeregt, was die Basis für einen Frequenzkamm im Infraroten bildet. Dieses Vier-Wellen-Mischen wurde im Mittel-IR über mehr als 3 THz durch gleichzeitiges Einkoppeln von zwei Laser-Pulsen (67 und 70 THz) in einen Anti-Reflexions-beschichteten Quantenkaskadenlaser gezeigt. In unbeschichteten Bauteilen wird dieser Effekt durch räumliches Lochbrennen, das wegen der schnellen Erholung des optischen Gewinns möglich ist, zusätzlich verstärkt.